



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2021-0000943
(43) 공개일자 2021년01월06일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 32/28 (2017.01) C01B 32/914 (2017.01)
(52) CPC특허분류
C01B 32/28 (2017.08)
C01B 32/914 (2017.08)
(21) 출원번호 10-2019-0076246
(22) 출원일자 2019년06월26일
심사청구일자 2019년06월26일

(71) 출원인
부경대학교 산학협력단
부산광역시 남구 용소로 45, 부경대학교내 (대연동)
(72) 발명자
안용식
부산광역시 남구 신선로 365, 부경대학교 재료공학과(용당동)
김화정
부산광역시 해운대구 청사포로 12, 101동 1601호 (좌동, 에스케이뷰아파트)
(74) 대리인
남진필, 박중수, 차상윤

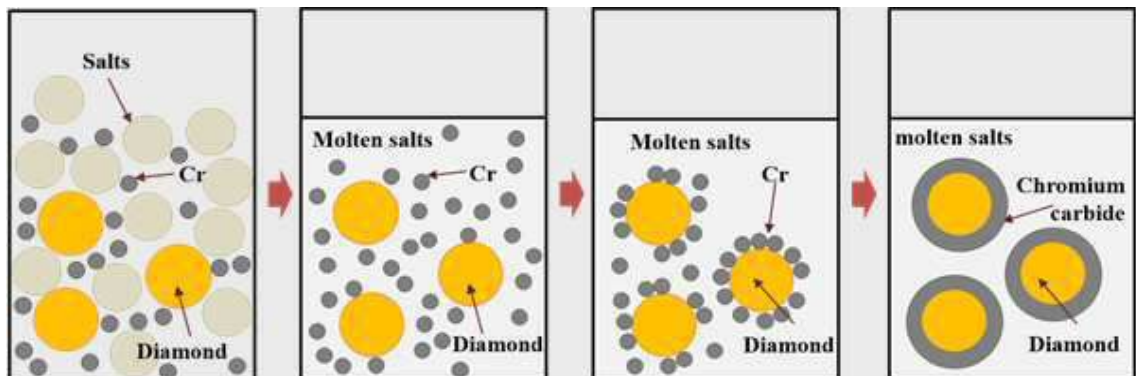
전체 청구항 수 : 총 15 항

(54) 발명의 명칭 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자

(57) 요약

본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자는 염화알칼리금속염, 금속 분말 및 다이아몬드 입자를 포함하는 혼합물을 700 내지 900℃에서 용융염법 수행하여 제조하는 것을 포함한다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류
C01P 2004/80 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

염화알칼리금속염, 금속 분말 및 다이아몬드 입자를 포함하는 혼합물을 용융염법 수행함을 포함하는, 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 2

제1항에 있어서,
상기 염화알칼리금속염은 LiCl, KCl 및 NaCl가 혼합된 것인,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 3

제2항에 있어서,
상기 염화알칼리금속염은,
LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%가 혼합된 것임을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 4

제1항에 있어서,
상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상인 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 5

제1항에 있어서,
상기 염화알칼리금속염 및 다이아몬드 입자의 무게비는 4:1 내지 1:4 인 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 6

제1항에 있어서,
상기 금속 분말 및 다이아몬드 입자의 몰비는 1:8 내지 1:12 인 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 7

제1항에 있어서,
상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행함을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 8

제1항에 있어서,
상기 용융염법은 아르곤(Ar) 분위기에서 수행함을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 9

제1항에 있어서,
상기 용융염법 수행 후,
얻어진 생성물의 염을 제거하는 단계;
상기 염이 제거된 생성물에서 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 여과하는 단계; 및
상기 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 세척 및 건조하는 단계;를 더 포함하는 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 10

제9항에 있어서,
상기 염을 제거하는 단계는 증류수를 이용하여 염을 용해시켜 수행하는 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 11

제9항에 있어서,
상기 세척은 에탄올을 이용하여 초음파 세척을 수행하는 것을 특징으로 하는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 12

제1항에 있어서,
상기 염화알칼리금속염은 LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%가 혼합된 것이며,
상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상이고,
상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행되는,
다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법.

청구항 13

제1항 내지 제12항 중 어느 한 항에 따라 제조된,
금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자.

청구항 14

제13항에 있어서,
상기 금속 탄화물의 두께는 1 내지 10 μm 인 것을 특징으로 하는,
금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자.

청구항 15

제13항에 있어서,
상기 금속 분말은 크롬이며,
상기 금속 탄화물은 크롬카바이드(Cr_7C_3)인,
금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자에 관한 것으로, 보다 구체적으로는 낮은 온도에서 용융염법을 통해 제조할 수 있는 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 전자 부품의 성능 및 신뢰성은 효과적인 열 관리에 달려있다. 전자 산업의 주요 개발과 발전은 높은 열전도성과 낮은 열팽창계수를 가진 물질을 발견하는 능력에 의존해왔다. 다이아몬드, 흑연, 탄소 섬유, 탄소나노튜브, 및 그래핀 등 형태의 탄소(C) 물질은 열 관리 어플리케이션(thermal management applications)에 직접적으로 사용되거나 금속과 같은 다른 물질과의 복합 재료의 일부로 사용될 수 있어 유망한 후보임이 입증되었다. 다이아몬드/구리(Cu) 복합 재료는 350 내지 780 W/mK의 범위로 높은 열전도성을 갖지만, 다이아몬드/금속 계면의 열응력 집중 및 소결 중 유해한 계면 화학 반응이 복합 재료의 열적 특성을 악화시킨다.

[0003] 고온 압축(hot pressing), 용융 금속의 매트릭스(matrix) 내 침투, 및 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering)을 포함하여 높은 열전도성을 가지는 다이아몬드/Cu 복합재료의 제조를 위한 여러 방법들이 현재 이용 가능하다. 그러나, 이러한 방법들은 800-1000°C의 높은 제조 온도가 요구되며, 이는 다이아몬드의 흑연화(graphitization)로 이루어질 수 있다. 다이아몬드 표면은 진공에서 697-1397°C의 온도 범위에서 흑연화(graphitization)를 겪는다. 다이아몬드 입자가 티타늄, 크롬(Cr), 몰리브덴(Mo), 또는 텅스텐(W) 등과 같은 강력한 카바이드 형성 물질로 코팅된 경우, 비교적 높은 온도에서도 입자의 표면을 흑연화로부터 보호할 수 있고, 게다가, 카바이드 코팅은 열전도성을 저하시키지 않고 다이아몬드와 금속 사이의 계면 결합을 개선한다. 카바이드 코팅은 용융염법, 진공 기상 증착법(vacuum vapor deposition), 솔-젤 공정법, 확산 방법, 및 도금 기술(plating techniques)을 이용한 다이아몬드 입자 상에 형성될 수 있다. 그러나, 진공 및 화학 기상 증착법 및 솔-젤 공정은 요구되는 재료 및 장치 때문에 비용이 많이 드는 경향이 있으며, 카바이드 형성 요소가 있는 도금 방법은 비교적 복잡하고 비용이 많이 든다.

[0004] 용융염법은 틀림없이 다이아몬드의 표면에 코팅을 형성하는 가장 간단한 방법들 중 하나이다. 코팅 반응 동안, 용융염 액체 환경(the molten salt liquid environment)은 비교적 낮은 온도에서 금속 카바이드 형성을 위한 반응 매질(media)로서 작용한다. 혼합염은 안정적이고, 쉽게 얻을 수 있고, 값 싸고, 물로 쉽게 씻겨낼 수 있

어야 한다. 일반적인 용융염법 절차는 코팅을 형성하기 위해 염화물(chlorides)이나 황산염(sulfates)의 혼합물을 사용한다. 많은 경우에 있어서, 염화나트륨(NaCl)-염화칼륨(KCl) 공융 혼합염이 액체 형성 온도를 낮추기 위해 사용되어왔다. 그러나, 통상적으로 900℃ 이상의 온도에서 코팅처리가 이루어지고 있어 다이아몬드의 흑연화가 발생할 수 있는 문제점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 본 발명의 일 목적은 비교적 낮은 온도에서 용융염법을 수행하여 다이아몬드 표면의 산화 및 흑연화를 방지할 수 있는 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법을 제공하는 것이다.

[0006] 본 발명의 다른 목적은 상기 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법에 의해 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0007] 본 발명의 일 목적을 위한 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법은 염화알칼리금속염, 금속 분말 및 다이아몬드 입자를 포함하는 혼합물을 용융염법 수행함을 포함한다.

[0008] 일 실시예에서, 상기 염화알칼리금속염은 LiCl, KCl 및 NaCl가 혼합된 것일 수 있다.

[0009] 일 실시예에서, 상기 염화알칼리금속염은 LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%가 혼합될 수 있다.

[0010] 일 실시예에서, 상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상일 수 있다.

[0011] 일 실시예에서, 상기 염화알칼리금속염 및 다이아몬드 입자의 무게비는 4:1 내지 1:4 일 수 있다.

[0012] 일 실시예에서, 상기 금속 분말 및 다이아몬드 입자의 몰비는 1:8 내지 1:12 일 수 있다.

[0013] 일 실시예에서, 상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행할 수 있다.

[0014] 일 실시예에서, 상기 용융염법은 아르곤(Ar) 분위기에서 수행할 수 있다.

[0015] 일 실시예에서, 상기 용융염법 수행 후, 얻어진 생성물의 염을 제거하는 단계; 상기 염이 제거된 생성물에서 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 여과하는 단계; 및 상기 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 세척 및 건조하는 단계;를 더 포함할 수 있다.

[0016] 일 실시예에서, 상기 염을 제거하는 단계는 증류수를 이용하여 염을 용해시켜 수행할 수 있다.

[0017] 일 실시예에서, 상기 세척은 에탄올을 이용하여 초음파 세척을 수행할 수 있다.

[0018] 일 실시예에서, 상기 염화알칼리금속염은 LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%가 혼합된 것이며, 상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상이고, 상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행할 수 있다.

[0019] 본 발명의 다른 목적을 위한 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자는 상기 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법에 의해 제조된다.

[0020] 일 실시예에서, 상기 금속 탄화물의 두께는 1 내지 10 μm 일 수 있다.

[0021] 일 실시예에서, 상기 금속 분말은 크롬이며, 상기 금속 탄화물은 크롬카바이드(Cr₇C₃)일 수 있다.

발명의 효과

[0022] 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자에 따르면, 종래의 기술과 비교하여 비교적 낮은 온도에서 용융염법을 수행함으로써 인하여 다이아몬드 표면의 산화 및 흑연화를 방지할 수 있고, 이로 인하여 다이아몬드 고유의 특성이 저하되지 않아 기계적 특성, 전기전도도 및 열전도도 등이 우수한 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0023] 도 1은 본 발명의 용융염법을 이용한 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅과정을 설명하기 위한 도면이다.
- 도 2는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 및 코팅되지 않은 다이아몬드 입자를 비교 분석하기 위한 SEM 이미지이다. 도 2의 (a)는 코팅되지 않은 다이아몬드 입자의 형태를 나타내는 SEM 이미지이다. 도 2의 (b) 및 (c)는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 형태를 나타내는 SEM 이미지이다.
- 도 3은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 구조를 분석하기 위한 X-선 회절 패턴을 나타내는 도면이다.
- 도 4는 본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 제조된 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 표면 분석하기 위한 SEM 이미지이다.
- 도 5는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 크기를 분석하기 위한 도면이다.
- 도 6은 본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 제조된 온도 및 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 두께를 분석하기 위한 도면이다.
- 도 7은 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 온도 범위에 따른 점도를 분석하기 위한 도면이다.
- 도 8은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 층을 분석하기 위한 도면이다. 도 8의 (a) 및 (b)는 이온 빔의 단면을 나타내는 단면도이고, (c)는 에너지 분산 분광법 라인 스캐닝 분석을 나타내는 도면이다.
- 도 9는 본 발명에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 EPMA 분석을 위한 도면이다. 도 9의 (a) 연마된(polished) 크롬-코팅된 다이아몬드 입자를 나타내고, (b)는 코팅 표면의 EPMA 분석을 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0024] 본 출원에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시 예를 설명하기 위해 사용된 것으로서 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.
- [0025] 다르게 정의되지 않는 한, 기술적이거나 과학적인 용어를 포함해서 여기서 사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가지고 있다. 일반적으로 사용되는 사전에 정의되어 있는 것과 같은 용어들은 관련 기술의 문맥 상 가지는 의미와 일치하는 의미를 가지는 것으로 해석되어야 하며, 본 출원에서 명백하게 정의하지 않는 한, 이상적이거나 과도하게 형식적인 의미로 해석되지 않는다.
- [0026] 본 발명은 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 제공한다.
- [0027] 도 1은 본 발명의 용융염법을 이용한 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅과정을 설명하기 위한 도면이다.
- [0028] 먼저, 도 1을 참조하여, 용융염법을 이용한 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅과정을 설명한다. 다이아몬드 표면에 코팅 층을 형성하기 위해 상기 염화알칼리금속염, 금속 분말 및 다이아몬드 입자를 포함하는 혼합물을 이용한다. 본 발명에서는 상기 염화알칼리금속염을 용융염으로써 이용할 수 있다. 상기 혼합물에 염화알칼리금속염이 용융될 수 있을 정도의 온도를 가하면 염화알칼리금속염이 용융된다. 상기 용융된 염화알칼리염은 혼합물에 내에 포함된 금속 분말을 용해시킬 수 있다. 상기 금속 분말은 용해되어 이동성 있는 양이온 및 국부화된 전자(delocalized electron)로 해리되어 이온화될 수 있다. 금속 이온은 혼합물 내의 다이아몬드 입자의 용해 속도보다 상당히 높다. 따라서, 이온화 후, 확산된 금속 이온은 다이아몬드 입자 표면에 흡착하면서 확산되며 상기 다이아몬드의 탄소 이온과 반응하여 금속 탄화물 층을 형성하게 된다. 따라서, 용융된 염화알칼리염은 다이아몬드 입자의 표면으로 금속 이온의 용해 및 운반을 용이하게 하며, 그 후에 금속 탄화물 층을 형성하

기 위해 반응하는 것으로 여겨질 수 있다.

- [0029] 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법은 상기 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법은 염화알칼리금속염, 금속 분말 및 다이아몬드 입자를 포함하는 혼합물을 용융염법 수행함을 포함한다.
- [0030] 상기 염화알칼리금속염은 용융염으로 이용될 수 있고, 일 실시예에서, LiCl, KCl 및 NaCl가 혼합된 것일 수 있으며, 상기 LiCl, KCl 및 NaCl의 혼합은 LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%로 혼합된 것일 수 있다. 이러한 범위를 벗어나는 몰비로 제조된 혼합물을 사용하여 다이아몬드 입자에 금속 탄화물 코팅하는 경우에는, 700℃에서 용융염법을 수행하여 금속 탄화물을 제조하였을 때 다이아몬드 표면에 금속 탄화물 코팅이 잘 되지 않는 문제점이 있다. 바람직하게는, LiCl, KCl 및 NaCl의 혼합은 LiCl 55 mol%, KCl 33 mol% 및 NaCl 12 mol%로 혼합된 것일 수 있다. 이에 대한 보다 구체적인 설명은 하기에서 실시예를 들어 후술하도록 한다.
- [0031] 상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상일 수 있다. 바람직하게는, 상기 금속 분말은 크롬(Cr)일 수 있다.
- [0032] 상기 금속 분말 및 다이아몬드 입자의 몰비는 1:8 내지 1:12 일 수 있다. 이러한 범위를 벗어나는 몰비로 제조된 혼합물을 사용하여 다이아몬드 입자에 금속 탄화물을 코팅하는 경우에는, 다이아몬드 입자 표면에 금속 탄화물층이 균일하게 형성되지 않는 문제점이 있다. 바람직하게는, 금속 분말 및 다이아몬드 입자의 몰비는 10:1 일 수 있다.
- [0033] 상기 염화알칼리금속염과 다이아몬드입자/금속 분말의 무게비는 4:1 내지 1:4일 수 있다. 이러한 범위를 벗어나는 무게비로 제조된 혼합물을 사용하여 다이아몬드 입자에 금속 탄화물 코팅하는 경우에는, 다이아몬드입자에 금속 탄화물 코팅층이 균일하게 형성되지 못하는 문제점이 있거나 다이아몬드입자에 금속 탄화물 코팅층이 너무 두껍게 형성되는 문제점이 있다. 바람직하게는, 염화알칼리금속염과 다이아몬드입자/금속 분말의 무게비는 3:2 일 수 있다.
- [0034] 상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행할 수 있다. 900℃ 이상의 높은 온도에서 용융염법을 수행하여 본 발명을 제조하는 경우에는, 다이아몬드 표면에 흑연화를 일으킬 수 있어 열전도도를 포함한 다이아몬드 고유의 특성이 저하되는 문제점이 있고, 700℃ 이하의 낮은 온도에서 용융염법을 수행하여 본 발명을 제조하는 경우에는, 염화알칼리금속염이 용융될 수 있는 충분한 온도를 제공하지 못하여 금속 분말이 용융염에 용해되지 못해 궁극적으로 다이아몬드 입자 표면에 금속 탄화물 층을 형성하지 못하는 문제점이 있다.
- [0035] 상기 용융염법은 아르곤(Ar) 분위기에서 수행될 수 있다.
- [0036] 상기 용융염법 수행 후, 얻어진 생성물의 염을 제거하는 단계; 상기 염이 제거된 생성물에서 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 여과하는 단계; 및 상기 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 세척 및 건조하는 단계;를 더 포함할 수 있다.
- [0037] 상기 염을 제거하는 단계는 증류수를 이용하여 염을 용해시켜 수행할 수 있다. 상기 염을 제거하는 단계를 수행하기 전에, 얻어진 생성물을 노냉시키는 단계를 더 포함할 수 있다. 일 실시예에서, 염을 제거하는 단계는 상기 얻어진 생성물을 증류수를 이용하여 60 내지 70℃를 유지한 상태로 30 내지 60분 교반하면서 염을 용해시킬 수 있다.
- [0038] 상기 염이 제거된 생성물에서 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 여과하는 단계는, 일례로, 체(sieme)를 이용하여 체질하여 수행될 수 있다. 이 때, 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자를 얻을 수 있고, 여과를 통해 걸러지는 물질로는 염이 용해되어 있는 증류수 및 잔여 금속 분말 및 기타 물질 등이 해당될 수 있다.
- [0039] 상기 여과 후, 얻어진 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자는 세척 및 건조단계를 수행할 수 있다. 상기 세척은 에탄올을 이용하여 초음파 세척을 수행하는 것일 수 있다. 상기 세척 수행 후, 건조하는 단계를 수행할 수 있다. 일 실시예에서, 상기 건조는, 30분 내지 60분 동안 70 내지 100℃로 건조시킨 후 공냉시키는 열처리를 수행하여 건조시킬 수 있다.
- [0040] 일 실시예에서, 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법은 상기 염화알칼리금속염은 LiCl 18~58 mol%, KCl 11~36 mol% 및 NaCl 6~71 mol%가 혼합된 것이며, 상기 금속 분말은 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W) 및 크롬(Cr) 중 선택된 어느 하나 이상이고, 상기 용융염법은 700 내지 900℃에서 수행될 수 있다.
- [0041] 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법을 통해 제조된 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자는 상기 금속 탄화물의 두께가 1 내지 10 μm 일 수 있다.

- [0042] 일 실시예에서, 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법을 수행하는 데 있어서, 금속 분말로 크롬을 사용한 경우에 제조된 금속 탄화물은 크롬카바이드(Cr_7C_3)일 수 있다.
- [0043] 본 발명의 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅방법 및 이의 방법으로 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자에 따르면, 용융염법을 사용하여 제조함으로써 금속기지와 다이아몬드 입자 사이의 계면결합력을 향상시켜 조직이 치밀한 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 제공할 수 있다.
- [0044] 또한, 코팅 수행 온도를 700°C 로 감소시킴으로서 종래의 고온에서 코팅과정 동안 발생할 수 있는 다이아몬드 표면의 산화 및 흑연화를 방지하여 다이아몬드 고유의 특성인 전기전도도, 열전도도 및 고강도 효과가 우수한 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드를 제공할 수 있다. 높은 열전도성을 이용하여 본 발명의 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드는 방열 재료로 사용될 수 있다.
- [0045] 이하에서, 구체적인 실시예들 및 비교예를 통해서 본 발명의 단결정 나노 플레이트 알파-석영 결정 입자 및 이의 제조방법에 대해서 보다 상세히 설명하기로 한다. 다만, 본 발명의 실시예들은 본 발명의 일부 실시 형태에 불과한 것으로서, 본 발명의 범위가 하기 실시예들에 한정되는 것은 아니다.
- [0046] **실시예: LiCl-KCl-NaCl 용융염의 사용**
- [0047] 다이아몬드 입자로 CRJ1002-타입(CRJ1002-type) 다이아몬드 입자들(입자 사이즈: 120/140 메쉬(mesh))을 사용하였고, 금속 분말은 크롬 분말(Cr powder) (>99% 순도, Sigma-Aldrich Corp., St. Louis, MO, USA)을 사용하였고, 용융염으로써 사용한 염화알칼리금속염은 시약-등급(reagent-grade) LiCl , KCl 및 NaCl (99% 순도; Junsei Chemical Company, Ltd., Tokyo, Japan)을 55:33:12의 몰비로 혼합한 LiCl-KCl-NaCl 염을 사용하였다. 상기 LiCl-KCl-NaCl 3-상 시스템의 공융점은 346°C 에 해당한다. 상기 다이아몬드 입자, 크롬 분말 및 염화알칼리금속염을 혼합하여 혼합물을 제조하였다. 상기 다이아몬드 입자 및 크롬 분말을 10:1의 몰 비율로 혼합하였고, 상기 LiCl-KCl-NaCl 염화알칼리금속염 및 상기 다이아몬드 입자/크롬 분말을 3:2의 무게비로 혼합하였다. 상기 혼합물을 알루미늄 도가니에 넣어 고순도 아르곤 분위기의 튜브전기로(tube furnace)에서 600 내지 900°C 에서 15 내지 60분간 열처리 한 후 상온으로 냉각시켰다. 냉각 후, 얻어진 생성물을 증류수에 가열하여 염을 제거한 뒤 건조하여, 본 발명의 실시예에 따른 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자를 얻었다.
- [0048] **비교예: LiCl-KCl-CaCl_2 용융염의 사용**
- [0049] 용융염으로써 사용한 염화알칼리금속염을 시약-등급(reagent-grade) LiCl , KCl 및 CaCl_2 을 50.5:44.2:5.3의 몰비로 혼합한 LiCl-KCl-CaCl_2 염으로 사용한 것을 제외하고는, 본 발명의 실시예 1에 따른 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅 공정과 실질적으로 동일한 공정을 통해서, 본 발명의 비교예에 따른 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자를 제조하였다.
- [0050] **실험예 1: 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 표면 분석**
- [0051] 본 발명의 실시예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하여 700°C 의 분위기 하에서 60분 동안 코팅을 수행함으로써 제조된 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자에 대해서 표면 분석을 수행하였다. 상기 표면 분석은 주사전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)(S-2700, Hitachi Ltd., Tokyo, 일본)을 이용하여 이미지를 얻음으로써 수행하였다. 그 결과를 도 2에 나타낸다.
- [0052] 도 2는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 표면을 분석하기 위한 SEM 이미지이다. 도 2의 (a)는 다이아몬드(Raw diamond) 입자의 형태를 나타내는 SEM 이미지이다. 도 2의 (b) 및 (c)은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자의 형태를 나타내는 SEM 이미지이다.
- [0053] 도 2를 참조하면, (a)의 다이아몬드(Raw diamond) 입자의 형태와 비교하여, (b) 및 (c)의 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자는 표면이 균일하게 코팅된 것을 확인할 수 있고, 다이아몬드 입자의 표면의 금속 탄화물 코팅 층은 균일하고 고른 외관을 갖는 것을 확인할 수 있다.
- [0054] **실험예 2: 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 구조 분석**
- [0055] 본 발명의 실시예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하여 600 내지 900°C 의 분위기 하에서 60분 동안 코팅을 수행함으로써 제조된 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자들에 대해서 구조 분석을 수행하였다. 상기 구조 분석은 X-선 회절 분석법(XRD)(Ultima IV, Rigaku)을 이용하여 X-선 회절 패턴(X-ray diffraction patterns)을 얻음으로써 수행하였다. 그 결과를 도 3에 나타낸다.

[0056] 도 3은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 구조를 분석하기 위한 X-선 회절 패턴을 나타내는 도면이다.

[0057] 도 3을 참조하면, 600℃에서 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자는 다이아몬드 피크만을 나타내며, 이는 다이아몬드 입자가 아직 코팅되지 않았음을 나타낸다. 700℃에서 금속 탄화물 코팅이 수행된 다이아몬드 입자는 Cr_7C_3 및 다이아몬드 피크가 모두 확인되었으며, 이는 다이아몬드/크롬-분말의 코팅 반응이 이미 발생했음을 나타내며, 게다가, 이러한 온도에서 다이아몬드의 흑연화의 증거는 보이지 않음을 확인할 수 있다. 900℃까지 코팅 수행 온도가 상승함에 따라 Cr_7C_3 피크가 증가함을 확인할 수 있다. 또한, 본 발명의 실시예에 따라 제조된 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자는 Cr_7C_3 의 피크를 나타내므로, 다이아몬드 입자에 크롬카바이드(Cr_7C_3)로 코팅되었음을 확인할 수 있다.

[0058] **실험예 3: 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 표면 분석**

[0059] 본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염을 사용하여 800℃ 및 900℃에서 30분 및 60분 동안 코팅을 수행함으로써 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자들에 대해서 표면 분석을 수행하였다. 상기 표면 분석은 주사전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)(S-2700, Hitachi Ltd., Tokyo, 일본)을 이용하여 이미지를 얻음으로써 수행하였다. 그 결과를 도 4에 나타낸다.

[0060] 도 4는 본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 제조된 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 표면 분석하기 위한 SEM 이미지이다.

[0061] 도 4를 참조하면, LiCl-KCl-NaCl 용융염을 사용하여 코팅된 다이아몬드 입자는 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염을 사용하여 코팅된 다이아몬드 입자와 비교하여 더 균일하고 고르게 코팅된 표면을 갖는 것을 확인할 수 있다. 이러한 코팅 표면의 차이는 실시예 및 비교예에서 사용된 용융염의 확산률에 기인한 것을 예상할 수 있다.

[0062] **실험예 4: 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 크기 분석**

[0063] 본 발명의 실시예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하여 700 내지 900℃의 분위기 하에서 60분 동안 코팅을 수행함으로써 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자에 대해서 입자 크기 분석을 수행하였다. 그 결과를 도 5에 나타낸다

[0064] 도 5는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 온도에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자 크기를 분석하기 위한 도면이다.

[0065] 도 5를 참조하면, 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자는 비교적 균일한 입자 크기 분포를 가지며, 평균 직경은 다이아몬드 입자(Raw diamond)의 평균 크기보다 큰 것을 확인할 수 있다. 또한, 코팅 온도에 따라 금속 탄화물이 코팅된 다이아몬드 입자의 크기가 증가함을 알 수 있다.

[0066] 온도 및 처리 시간에 대한 다이아몬드 입자의 크기 및 코팅 두께를 계산하였다. 코팅 층의 두께는 가공되지 않은 다이아몬드 입자(Raw diamond)와 코팅된 다이아몬드 사이의 크기 차이로부터 계산되었고, 그 결과를 하기 표 1에 나타낸다.

표 1

온도 (℃)	시간 (분)(min)	입자 크기 (μm)	코팅 두께 (Coating thickness) (μm)
다이아몬드(Raw diamond)		132.9	
900	60	142.8	9.9
	30	139.5	6.6
	15	137.7	4.8
800	60	138.8	5.9
	30	135.9	3
	15	133.7	0.8
700	60	134.8	1.9

[0067]

[0068] 상기 표 1은 온도 및 처리 시간에 대한 입자 크기 및 코팅 두께를 나타낸다. 표 1을 참조하면, 코팅된 층의 두

께는 1 내지 10 μm 의 범위를 가질 수 있는 것을 확인할 수 있다.

실험예 5: 온도 및 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 두께 분석

본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염을 이용하여 700 내지 900℃ 의 분위기 하에서 코팅을 수행함으로써 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자들에 대해서 코팅 두께 분석을 수행하였다. 상기 코팅 두께 분석은 입자 크기 분석(PSA)을 사용하여 결정된 코팅 층의 평균 두께를 통하여 수행되었다. 그 결과를 도 6에 나타낸다.

도 6은 본 발명의 실시예 및 비교예에 따라 제조된 온도 및 용융염에 따른 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 두께를 분석하기 위한 도면이다.

도 6을 참조하면, LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 두 가지 용융염을 사용하여 코팅된 층의 두께와 코팅 온도의 사이의 관계를 나타낸다. PSA 결과를 사용하여 코팅된 층의 평균 두께를 계산하였고, 코팅 두께는 코팅 온도에 따라 증가하는 것을 확인할 수 있다. LiCl-KCl-NaCl의 용융염을 사용했을 때, 다이아몬드 입자에 코팅된 코팅 층은 온도와 관계없이 LiCl-KCl-CaCl₂의 용융염을 사용 했을 때 보다 훨씬 더 두꺼운 것으로 나타났다. 이를 통해서, 코팅 반응 또는 확산율이 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염에서 보다 LiCl-KCl-NaCl 용융염에서 훨씬 빠르다는 것을 알 수 있다.

상기 실시예 및 비교예에서 사용된 용융염의 단일염인 LiCl, NaCl, KCl, and CaCl₂의 확산에 대해서 분석하였다. 상기 확산 분석은 용융 시 원소 또는 원자의 확산 속도는 확산 계수가 용융물의 점도에 반비례하는 윌케-창(Wilke-Chang) 식을 사용하여 수행되었다. 특정한 물질 η 에 대한 점도는 하기의 식 1과 같이 온도의 함수로 나타낼 수 있다

<식 1>

$$\eta = A \exp \frac{E_{\eta}}{RT} (cp)$$

상기 식 1에서, cp는 점성이고, A는 단일 염의 상수(constant of the single salt melts)이고, R은 기체 상수(8.314 J/(mol · K))이고, T는 절대 온도이고, E _{η} 는 용융물의 활성화 에너지[J/mol]이다.

상기 식 1을 이용하여 910 내지 1240 K 온도 범위에서 점성 운동에 대한 단일 염용 상수 및 LiCl, NaCl, KCl, and CaCl₂의 활성화 에너지를 계산하였고, 그 결과를 하기의 표 2에 나타낸다.

표 2

	A(10 ³)	E _{η}	온도 범위(K)
LiCl	33.06	7007	910-1080
NaCl	18.60	9308	1090-1240
KCl	49.84	6586	1060-1200
CaCl ₂	10.88	11997	1060-1240

또한, 상기 식1을 이용하여 계산된 온도에 따른 LiCl, NaCl, KCl, and CaCl₂ 단일 염(single salt)의 점도를 계산하였고, 그 결과를 하기의 표 3에 나타낸다.

표 3

온도(℃)	LiCl	NaCl	KCl	CaCl ₂
700	7.86	5.88	11.25	4.79
800	7.25	5.28	10.43	4.18
900	6.78	4.83	9.79	3.72

실험예 6: 온도의 함수에 따른 용융염의 점도 분석

- [0082] 본 발명의 실시예 및 비교예에 사용된 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 700 내지 900℃ 온도 범위에 따른 점도를 분석하였다.
- [0083] 도 7은 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 온도 범위에 따른 점도를 분석하기 위한 도면으로, 온도의 함수에 따른 LiCl-KCl-NaCl 및 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 점도를 계산된 점도를 나타낸다.
- [0084] 용융염의 점도는 온도가 증가할수록 감소하는 것을 확인할 수 있다. LiCl-KCl-NaCl 용융염은 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염 보다 훨씬 낮은 점도를 갖는 것을 확인할 수 있으므로, 따라서, LiCl-KCl-NaCl 용융염은 높은 확산 속도를 갖는 것을 예상할 수 있고, 이에, LiCl-KCl-NaCl 용융염은 다이아몬드 표면에서 보다 균일한 코팅을 제공할 수 있음을 알 수 있다.
- [0085] 이를 통해서, LiCl-KCl-NaCl 용융염은 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염보다 낮은 온도인 700℃에서 금속 탄화물 코팅을 가능하게 하고, LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 코팅 반응은 800℃ 이상의 온도에서만 일어남을 알 수 있다. 특히, LiCl-KCl-NaCl 용융염의 공융점은 346℃인 반면, LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염의 공융점은 400℃이다.
- [0086] **실험예 7: 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 층 분석**
- [0087] 본 발명의 실시예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 용융염에서 700℃ 분위기에서 60분 동안 코팅이 수행되어 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 층 분석을 수행하였다. 상기 코팅 층 분석은 주사전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)(S-2700, Hitachi Ltd., Tokyo, 일본) 및 에너지 분산 X선 스펙트럼 분석(Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy, EDS)이용하여 결과를 얻었다. 그 결과를 도 8에 나타낸다.
- [0088] 도 8은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 코팅된 다이아몬드 입자의 코팅 층을 분석하기 위한 도면으로, 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 SEM 이미지이다. 도 8의 (a) 및 (b)는 이온 빔의 단면을 나타내는 단면도이고, (c)는 에너지 분산 분광법 라인 스캐닝 분석을 나타내는 도면이다.
- [0089] 도 8을 참조하면, EDS 라인 스캐닝 분석을 통해 탄소(C) 및 크롬(Cr) 원소의 농도 변화를 알 수 있으며, 상기 탄소(C)는 표면에서 중앙까지 1.9 μm 거리에서 관찰됨을 알 수 있다. 따라서, 코팅 층인 Cr₇C₃ 층의 계면의 두께는 약 1.9 μm 로, 상기 표 1에서 나타낸 바와 측정된 코팅 두께 결과가 완벽하게 일치하는 것을 알 수 있다. 또한, 상기 카바이드는 실험예 2인 XRD 분석에서 이미 Cr₇C₃으로 확인되었으므로, 이 또한 결과가 일치하는 것을 확인할 수 있다.
- [0090] **실험예 8: 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 EPMA 분석**
- [0091] 본 발명의 실시예에 따라 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하여 800℃ 분위기에서 60분 동안 코팅을 수행함에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 전자 프로브 미세 분석(Electron probe microanalysis, EPMA)을 수행하여 이미지를 얻었다. 그 결과를 도 9에 나타낸다.
- [0092] 도 9는 본 발명에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자의 EPMA 분석을 위한 도면으로, 도 9의 (a) 연마된(polished) 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 나타내고, (b)는 코팅 표면의 EPMA 분석을 나타낸다.
- [0093] 도 9를 참조하면, 연마된(polished) 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드 입자를 EDS를 이용한 원소 맵핑을 통하여 다이아몬드 입자 표면에서 높은 Cr 함량을 나타냄을 확인할 수 있고, 이는 균일한 Cr₇C₃ 코팅임을 알 수 있다. Cr₇C₃ 층의 평균 두께는 약 5 μm 이며, 이 결과는 상기 실험예 4에서 얻은 SEM 분석에 의해 결정된 코팅 층 두께와 잘 일치하는 것을 확인할 수 있다.
- [0094] 결론적으로, 본 발명에서, 다이아몬드 입자는 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 사용한 700 내지 900℃ 범위의 온도에서 다이아몬드와 크롬(Cr) 입자를 가열함으로써 카바이드 층으로 코팅되었다. 코팅된 층은 Cr₇C₃로 판명되었다. 코팅 층의 두께는 코팅 온도 및 시간에 따라 선형적으로 증가할 수 있다. 코팅을 위해 요구되는 온도는 LiCl-KCl-NaCl 용융염에 대해 700℃였고, 이는 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염을 이용했을 때 요구되는 온도보다 훨씬 낮았다. LiCl-KCl-NaCl 용융염의 코팅 반응 속도가 훨씬 빠르기 때문에 코팅된 층은 LiCl-KCl-CaCl₂ 용융염을 사용하는 코팅 층보다 훨씬 두껍게 나타났다. 이러한 결과는 확산 속도와 점도에 기인한 것으로 알 수 있다. LiCl-KCl-NaCl 용융염의 점도는 훨씬 낮아서 더 높은 확산 계수를 나타냈다. PSA가 측정한 코팅 두께는 EDS와 정확하게 일치했다.

[0095] 실험예 9: 용융염의 혼합 비율에 따른 금속 탄화물 코팅 평가

[0096] 본 발명의 실시예에 따라 상이한 LiCl, KCl 및 NaCl의 몰.%로 혼합된 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하여 700℃ 분위기에서 코팅을 수행함에 따라 제조된 금속 탄화물 코팅된 다이아몬드의 금속 탄화물 코팅을 평가하였다. LiCl, KCl 및 NaCl의 상태를 참조하여 용융염의 NaCl의 함량에 따라 용융온도를 기준으로 상기 평가를 수행하였고, 그 결과를 표 4에 나타낸다.

표 4

[0097]

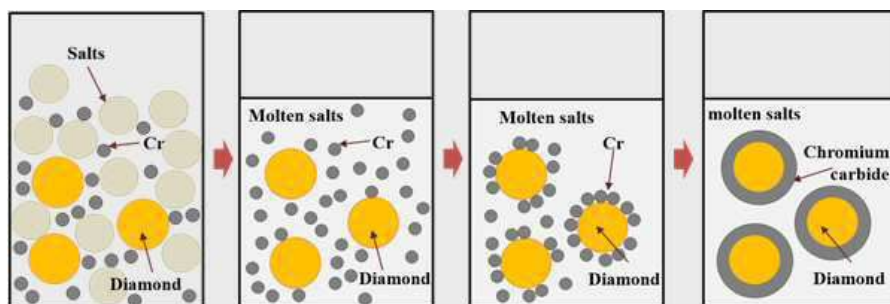
용융온도	몰(Mol.%)			700℃에서의 코팅 유무
	LiCl	KCl	NaCl	
348	58.5	41.5	0	X
348	58	36	6	0
346	55	33	12	0
384	53	34	13	0
400	51	33	16	0
450	49	30	21	0
500	44	28	28	0
550	39	24	37	0
600	32	21	47	0
650	27	16	57	0
700	18	11	71	0
750	9.5	5.5	85	X
800	0	0	100	X
658	0	50	50	X

[0098] 표 4를 참조하면, LiCl 18~58 mol.%, KCl 11~36 mol.% 및 NaCl 6~71 mol.% 인 범위를 만족하는 LiCl-KCl-NaCl 용융염을 이용하였을 때 다이아몬드 입자의 금속 탄화물 코팅이 가능한 것을 확인할 수 있다.

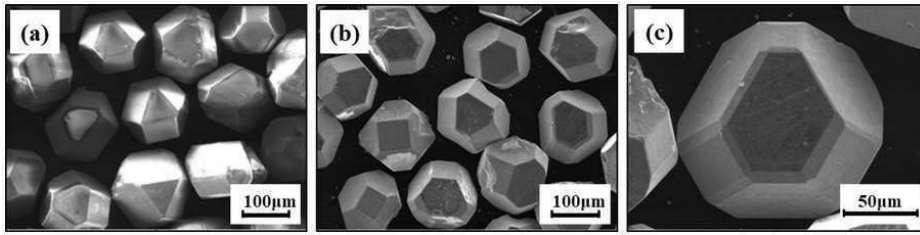
[0099] 상기에서는 본 발명의 바람직한 실시예를 참조하여 설명하였지만, 해당 기술 분야의 숙련된 당업자는 하기의 특허 청구 범위에 기재된 본 발명의 사상 및 영역으로부터 벗어나지 않는 범위 내에서 본 발명을 다양하게 수정 및 변경시킬 수 있음을 이해할 수 있을 것이다.

도면

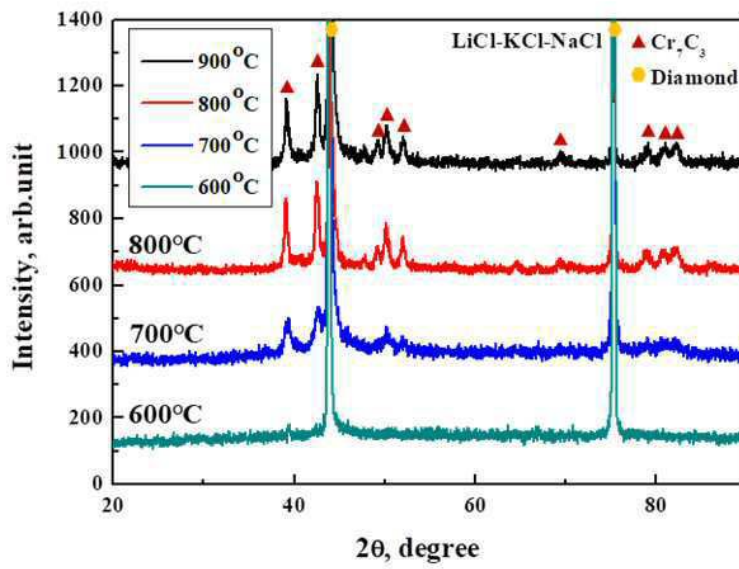
도면1



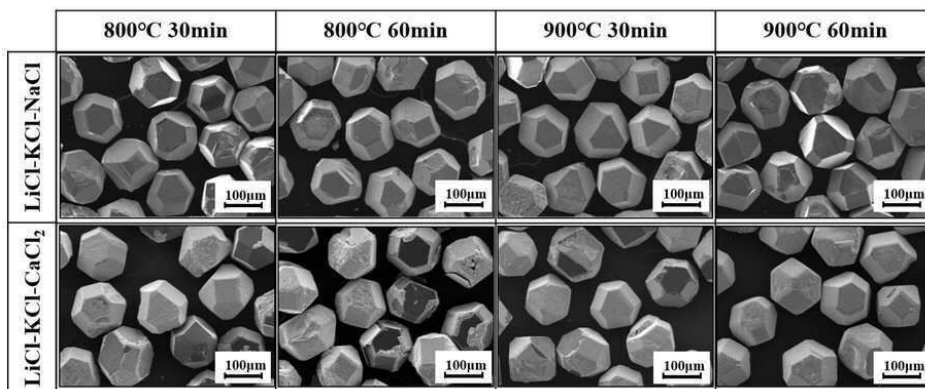
도면2



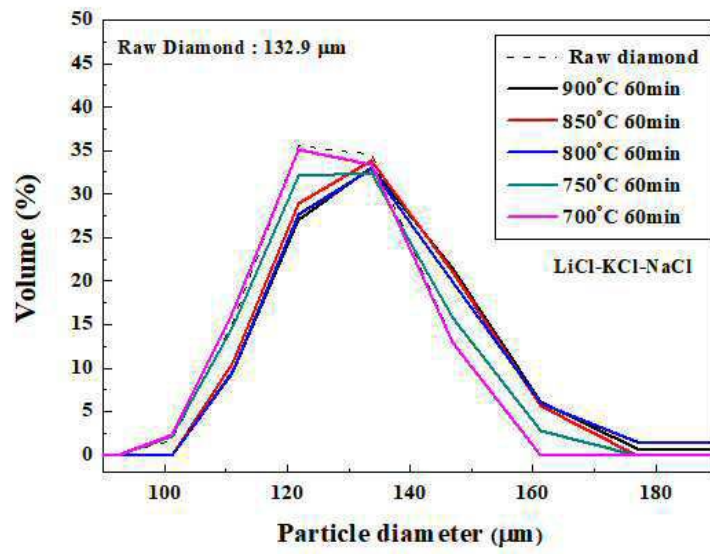
도면3



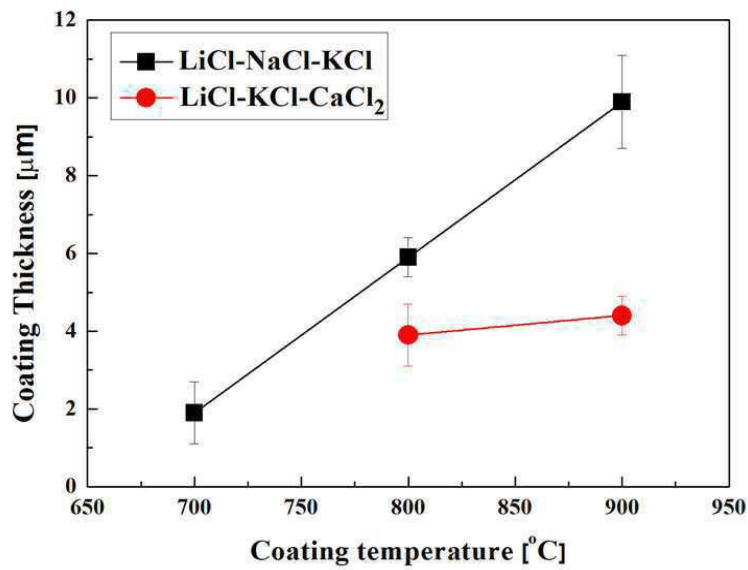
도면4



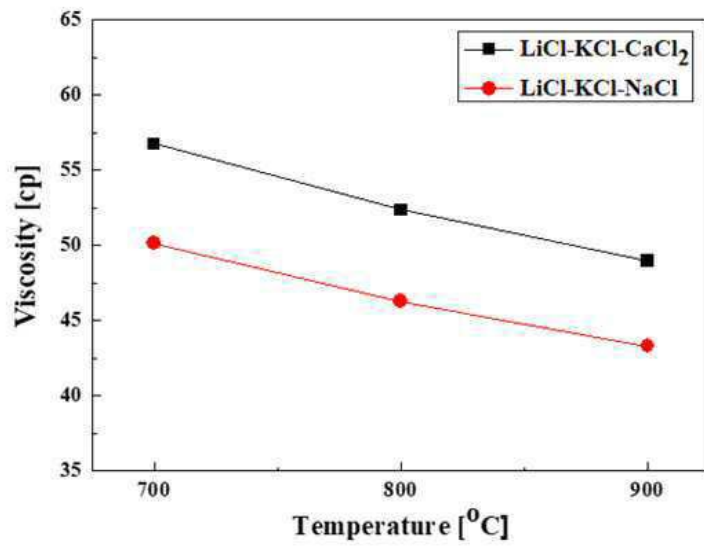
도면5



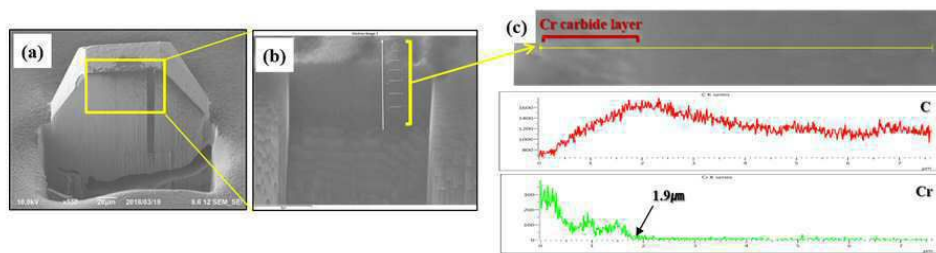
도면6



도면7



도면8



도면9

